

**This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record**

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

**Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.**

**Defects in the images may include (but are not limited to):**

- **BLACK BORDERS**
- **TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- **FADED TEXT**
- **ILLEGIBLE TEXT**
- **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- **COLORED PHOTOS**
- **BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS**
- **GRAY SCALE DOCUMENTS**

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problem Mailbox.**

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 11-345618

(43)Date of publication of application : 14.12.1999

(51)Int.Cl.

H01M 8/02  
H01M 8/10

(21)Application number : 10-169132

(71)Applicant : NISSHIN STEEL CO LTD

(22)Date of filing : 03.06.1998

(72)Inventor : MAEDA YASUHARU  
MURAKAMI MASAHIRO  
KOSHIIISHI KENJI

## (54) COATING METAL SEPARATOR MATERIAL FOR SOLID POLYMER FUEL CELL

### (57)Abstract:

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To decrease the contact resistance on the coating film surface and increase conductivity and acid resistance by forming a coating film containing a conductor made of mixed powder of graphite and carbon black in the specified thickness on the surface of an acid-treated base material of austenite stainless steel.

**SOLUTION:** The passive film formed on the surface of an austenite stainless steel plate used as a base material is removed by acid pickling, a coating material prepared by dispersing mixed powder of graphite and carbon black is applied to the base material, and a conductive coating film having a film thickness of 3-20  $\mu$ m is formed. The contents of graphite powder and carbon black powder in the coating material are preferable to be 25-50 pts.wt. graphite and 50-90 pts.wt. carbon black based on the 100 pts.wt. resin from the standpoint of the conductivity of the coating film, the adhesion of the coating film, coating material property, and coating work efficiency. The coating film can keep stable conductivity by the elastic property even under the environment where vibration or shock is applied.

### LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平11-345618

(43) 公開日 平成11年(1999)12月14日

(51) Int.Cl.<sup>6</sup>

識別記号

F I

H 0 1 M 8/02  
8/10

H 0 1 M 8/02  
8/10

B

審査請求 未請求 請求項の数 1 F D (全 5 頁)

(21) 出願番号 特願平10-169132

(22) 出願日 平成10年(1998)6月3日

(71) 出願人 000004581

日新製鋼株式会社

東京都千代田区丸の内3丁目4番1号

(72) 発明者 前田 靖治

千葉県市川市高谷新町7番地の1 日新製  
鋼株式会社技術研究所塗装・複合材料研究  
部内

(72) 発明者 村上 雅洋

千葉県市川市高谷新町7番地の1 日新製  
鋼株式会社技術研究所塗装・複合材料研究  
部内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 固体高分子型燃料電池用塗装金属セパレータ材料

(57) 【要約】

【課題】耐酸性および導電性に優れ、接触抵抗に起因するジュール熱の発生量を抑えた固体高分子型燃料電池用塗装金属セパレータ材料を提供する。

【解決手段】この材料は、表面を酸洗したオーステナイト系ステンレス鋼を基材とし、導電性塗膜を基材表面に3〜20 $\mu$ m形成し、該塗膜中の導電剤がグラファイト粉末と、カーボンブラックとの混合粉末である。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】表面を酸洗したオーステナイト系ステンレス鋼を基材とし、導電性塗膜を基材表面に3～20 $\mu$ m形成し、該塗膜中の導電剤がグラファイト粉末と、カーボンブラックとの混合粉末であることを特徴とする固体高分子型燃料電池用塗装金属セパレータ材料。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、固体高分子型燃料電池用塗装金属セパレータ材料に関する。

## 【0002】

【従来の技術】燃料電池の中でも、固体高分子型の燃料電池は低温で動作でき、構成部材が固体のため、振動や衝撃に曝される用途にも適用できる。また、出力密度が高いため小型化に適し燃料効率も高い等の長所を備えている。固体高分子型燃料電池は、分子中にプロトン交換基をもつ固体高分子樹脂膜がプロトン導電性電解質として機能することを利用したものであり、他の形式の燃料電池と同様に固体高分子膜の一侧に水素等の燃料ガスを流し、他側に空気等の酸化性ガスを流す構造になっている。

【0003】具体的には、固体高分子膜1は図1に示すように両側に空気電極2および水素電極3が接合され、それぞれガスカート4を介してセパレータ5を対向させている。空気電極2側のセパレータ5には空気供給口6、空気排出口7が形成され、水素電極3側のセパレータ5には水素供給口8、水素排出口9が形成されている。セパレータ5には水素gおよび酸素又は空気oの導通および均一分配のため、水素gおよび酸素又は空気oの流動方向に延びる複数の溝10が形成されている。また、発電時に発熱があるため、給水口11から送り込んだ冷却水wをセパレータ5の内部に循環させた後、排水口12から排出させる水冷機構をセパレータ5に内蔵させている。水素供給口8から水素電極3とセパレータ5との間隙に送り込まれた水素gは、電子を放出したプロトンとなって固体高分子膜1を透過し、空気電極2側で電子を受け、空気電極2とセパレータ5との間隙を通過する酸素又は空気oによって燃焼する。そこで、空気電極2と水素電極3との間に負荷をかけるとき、電力を取り出すことができる。

【0004】燃料電池は、1セル当たりの発電量が極く僅かである。そこで、図1(b)に示すようにセパレータ5、5で挟まれた固体高分子膜を1単位とし、複数のセルを積層することによって、取り出し可能な電力量を大きくしている。多数のセルを積層した構造では、セパレータ5の抵抗が発電効率に大きな影響を及ぼす。発電効率を向上させるためには、導電性が良好で接触抵抗の低いセパレータが要求され、グラファイト質のセパレータが使用されている。グラファイト質のセパレータは、グラファイトブロックを所定形状に切り出し、切削加工

によって各種の孔や溝を形成している。そのため、材料費や加工費が高く、全体として燃料電池の価格を高騰させるとともに、生産性を低下させる原因になっている。しかも、材質的に脆いグラファイトでできたセパレータでは、振動や衝撃が加えられると破壊するおそれがある。そこで、プレス加工やパンチング加工等によって金属板からセパレータを造ることが提案され始めている。

## 【0005】

【発明が解決しようとする課題】表面に酸化皮膜や不動態皮膜を形成せず、接触抵抗の低い金属材料としてAuやPtが考えられるが、両者とも非常に高価のため燃料電池用セパレータ材料としては実用的でない。比較的経済的な金属材料として、ステンレス鋼等が考えられるがステンレス鋼は表面に不動態皮膜を形成しており表面抵抗や接触抵抗が高い。接触抵抗が高いと接触部分で多量のジュール熱が発生し、大きな熱損失を生じ燃料電池の発電効率を低下させる。さらに、金属板単体ではグラファイト材料がもつ摺動性を有していないため、金属板をプレスやパンチング加工によりセパレータ形状に加工し、これらを複数積層した場合、接触面は金属と金属との面接触となり、振動や衝撃を伴う使用環境においては、徐々にデリケートな隙間を生じ材料自体が優れた導電性を有するとしても接触面における接触抵抗が著しく増加し、本来の性能を発揮できない。

## 【0006】

【課題を解決するための手段】本発明はこのような問題を解消するために案出されたもので、基材となるオーステナイト系ステンレス鋼板表面に形成した不動態皮膜を酸洗により除去した後、グラファイト粉末と、カーボンブラックとの混合粉末を分散配合した塗料を乾燥膜厚で3～20 $\mu$ mになるように塗装し、導電性塗膜を形成する。

## 【0007】

【発明の実施の形態】本発明は、オーステナイト系ステンレス鋼表面を酸洗したものを基材として用いる。酸洗前後の各種ステンレス鋼板の接触抵抗を表1に示すが、酸洗により不動態皮膜を除去されたものは何れも接触抵抗が著しく低下している。接触抵抗は酸洗前後のステンレス鋼板をグラファイト電極材に荷重5kg/cm<sup>2</sup>で接触させ、両者を測定した。また、酸洗によりステンレス鋼板表面にデリケートな凹凸が形成される。この凹凸は後工程で形成される導電性塗膜の密着性向上に有効となる。酸洗後のステンレス鋼板表面に形成される導電性塗膜は、樹脂と導電剤からなる。塗料の樹脂系は、酸素又は空気oが通過する空気電極2側は酸性雰囲気にあることから、耐酸性及び耐熱性に優れる樹脂であればよく、例えばポリオレフィン系樹脂が挙げられる。塗料中に配合される導電剤として、グラファイト粉末、カーボンブラック、ニッケル粉末、銀粉末などが考えられるが、耐酸性、経済性等からグラファイト電極材料と同質

のグラファイト粉末とカーボンブラックを選定した。なお、グラファイト粉末単独では塗膜に十分な導電性を付与できないので、カーボンブラックとの混合とした。 \*

\*【0008】

【表1】

鋼種別の酸洗前後における接触抵抗測定例 ( $m\Omega/cm^2$ )

	SUS430	SUS304	SUS316L
酸洗前	457	148	117
酸洗後	68	37	17

【0009】塗料中へのグラファイト粉末およびカーボンブラックの添加量は、塗膜の導電性、塗膜密着性、塗料性状、塗装作業性等を勘案して、樹脂100重量部に対しグラファイト粉末が20～50重量部、カーボンブラックが50～90重量部が好ましい。このように形成された導電性塗膜によって、表2に示すとおり、各ステンレス鋼板を基材としたものの何れも耐水接触角が大きくなり撥水性が増し長期にわたる耐食性が付与される。形成された導電性塗膜は一定の弾力性を有しているため、プレスやパンチング加工によりセパレータ形状に加工され、これらを複数積層し振動や衝撃を伴う環境で長期間使用しても、未塗装の金属板に発生し易い接触面間にデリケートな隙間を生じることなく、長期間にわたり安定した導電性を有するものである。安定した導電性を付与するための塗膜厚みは、乾燥膜厚で3～20 $\mu m$ が好ましい。乾燥塗膜厚3 $\mu m$ 未満では弾力性に乏しく、ピンホール等の塗膜欠陥を生じ易い。乾燥塗膜厚20 $\mu m$ を越えると塗膜密着性や加工性が劣る。

【0010】

【表2】

鋼種別の塗装前後における耐水接触角の測定例 (度)

	SUS304	SUS316L
塗装前	58	46
塗装後	86	85

【0011】

【実施例】板厚0.3mmのSUS316L鋼板をアルカリ脱脂し、塩酸10質量%、温度60℃で0（酸洗な

し）～10秒間酸洗し、直ちに鋼板両面に、グラファイト粉末（純度99.9%アスペクト比80、平均粒子径6 $\mu m$ ）と、水分散性カーボンブラックとを添加したポリオレフィン樹脂の水分散性塗料を乾燥膜厚で1～30 $\mu m$ になるようにバーコーター塗布し、最高到達板温120℃、乾燥時間60秒間で焼付け硬化させた。得られた塗装鋼板について接触抵抗、塗膜欠陥の有無、塗膜密着性を試験・調査した。結果を表3に示すとおり、本発明の材料は塗膜欠陥もなく、塗膜密着性にも優れ、接触抵抗も低くなることが判る。

20 【0012】試験調査項目

(1) 塗膜欠陥

塗装面を50倍拡大ルーペにより目視観察し、ピンホール等の塗膜欠陥が認められないものを○で、塗膜欠陥が認められたものを×で評価した。

(2) 塗膜密着性

塗装面を外側にした状態で、試験片と同一厚みの板を試験片内側に2枚挟み、試験片を180度折り曲げた後、折り曲げ頂点部にセロハン粘着テープを貼付し強制剥離して、塗膜残存量を50倍拡大ルーペにより目視観察し、塗膜剥離が全く認められないものを◎で、塗膜残存量が90%以上のものを○で、塗膜残存量が89～60%のものを△で、塗膜残存量が59%以下のものを×で評価した。

(3) 接触抵抗

試験片をグラファイト電極材に荷重5kg/cm<sup>2</sup>で接触させ、両者の接触抵抗を測定した。

【0013】

【表3】

区分	No	酸洗時間(秒)	導電剤配合比	乾燥塗膜厚( $\mu\text{m}$ )	塗膜欠陥	塗膜密着性	接触抵抗
本 発 明 例	1	3	50/50	3	○	◎	48
	2	3	50/50	5	○	○	40
	3	3	50/50	10	○	○	43
	4	3	50/50	15	○	○	46
	5	3	50/50	20	○	○	51
	6	5	20/90	10	○	○	58
	7	5	30/80	10	○	○	48
	8	5	40/70	10	○	○	45
	9	5	50/60	10	○	○	48
比 較 例	10	0	50/50	10	○	△	248
	11	5	50/50	1	×	△	36
	12	5	50/50	30	○	×	55

(注1) 導電剤の配合比の数値は、樹脂100重量部に対するグラファイト粉末(左側)とカーボンブラック(右側)の添加量(重量部)である。

(注2) 接触抵抗は $\text{m}\Omega/\text{cm}^2$ で示した。

#### 【0014】

【発明の効果】以上のとおり本発明の塗装金属セパレータ材料は、グラファイト粉末と、カーボンブラックとの混合配合により、塗膜表面の接触抵抗が低い。ステンレス鋼表面も酸洗により活性化されているため、塗装ステンレス鋼表面の界面抵抗も低く、材料全体として導電性に優れた材料となり、耐酸性にも優れ長期間振動や衝撃を伴う環境で使用されても塗膜の弾力性により、各セパレータの接触面にデリケートな隙間を生じることなく、安定した導電性を保持することができる。

#### 【図面の簡単な説明】

【図1】従来の固体高分子膜を電解質として使用した燃料電池の内部構造を説明する断面図(a)及び分解斜視図(b)

#### 【符号の説明】

1：固体高分子膜      2：空気電極      3：水素電極  
4：ガスケット  
5：セパレータ      6：空気供給口      7：空気排出口  
8：水素供給口  
9：水素排出口      10：溝      11：給水口      1  
40 2：排水口